

## PATENT ABSTRACTS OF JAPAN

(11)Publication number : 11-129396

(43)Date of publication of application : 18.05.1999

(51)Int.Cl.

B32B 15/08  
H01M 8/02

(21)Application number : 09-296541

(71)Applicant : AISIN TAKAOKA LTD  
MITSUBISHI PLASTICS IND LTD

(22)Date of filing : 29.10.1997

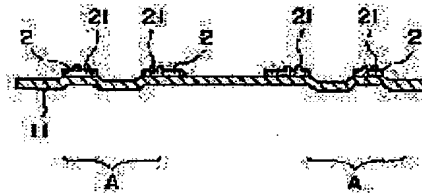
(72)Inventor : MATSUKAWA MASANORI  
FUJIMI YOSHIHIRO  
TSUNEKAWA TAKEYUKI  
YAMAGUCHI ETSURO

## (54) SILICONE RESIN-METAL COMPOSITE BODY

## (57)Abstract:

**PROBLEM TO BE SOLVED:** To improve workability and enable uniform laminating by forming silicone resin layers having specified thickness and hardness on at least one side of a thin metallic sheet through injection molding.

**SOLUTION:** A packing material composed of a silicone resin-metal composite body has a disc shape, where a thin metallic sheet 11 composed of a stainless steel sheet provided with ring-shaped projection and recess parts A, and silicone resin layers having rib parts 21 are partially formed in a concentric circle thereon. Thus, the stainless steel sheet 11 provided with the projection and recess parts is placed and retained in a male mold, and liquid silicone resin is injected form a gate of a female mold. The thickness of the silicone resin layer after the injection molding is 0.05-1.0 mm. The hardness of the silicone resin layer after the injection molding is 40-70, preferably 50-60. The hardness is measured in accordance with JISK-6301 spring-type hardness test, type A.



## LEGAL STATUS

[Date of request for examination] 04.07.2003

[Date of sending the examiner's decision of rejection]

[Kind of final disposal of application other than the examiner's decision of rejection or application converted registration]

[Date of final disposal for application]

[Patent number] 3809491

[Date of registration] 02.06.2006

[Number of appeal against examiner's decision]

(19) 日本国特許庁 (J P)

(12) 公開特許公報 (A)

(11) 特許出願公開番号

特開平11-129396

(43) 公開日 平成11年(1999) 5月18日

(51) Int.Cl.\*

識別記号

F I

B 3 2 B 15/08

B 3 2 B 15/08

U

H 0 1 M 8/02

H 0 1 M 8/02

B

審査請求 未請求 請求項の数3 O L (全 6 頁)

(21) 出願番号 特願平9-296541

(22) 出願日 平成9年(1997)10月29日

(71) 出願人 000100805

アイシン高丘株式会社

愛知県豊田市高丘新町天王1番地

(71) 出願人 000006172

三菱樹脂株式会社

東京都千代田区丸の内2丁目5番2号

(72) 発明者 松川 政憲

愛知県豊田市高丘新町天王1番地 アイシン高丘株式会社内

(72) 発明者 藤見 善裕

滋賀県長浜市三ツ矢町5番8号 三菱樹脂株式会社長浜工場内

(74) 代理人 弁理士 近藤 久美

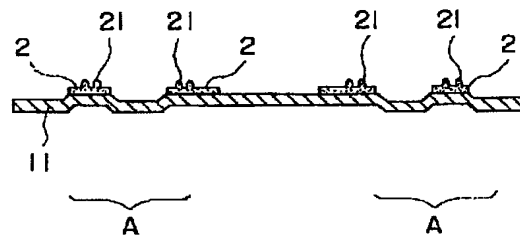
最終頁に続く

(54) 【発明の名称】 シリコーン樹脂-金属複合体

(57) 【要約】

【課題】 電気・電子部品等のクッション材、パッキン材、スペーサー、特に燃料電池のセパレータとして好適に使用でき、複雑な形状や、部品の小型化が可能なシリコーン樹脂-金属複合体を提供する。

【解決手段】 金属薄板の少なくとも片面に厚みが0.05mm~1.0mmで硬度(J I S K 6 3 0 1 スプリング式硬さ試験 A形)が40~70の範囲のシリコーン樹脂層を射出成形法により形成してなるシリコーン樹脂-金属複合体。



(2)

特開平11-129396

2

## 【特許請求の範囲】

【請求項1】 金属薄板の少なくとも片面に厚みが0.05mm～1.0mmで硬度(JISK6301 スプリング式硬さ試験 A形)が40～70の範囲のシリコーン樹脂層を射出成形法により形成してなるシリコーン樹脂-金属複合体。

【請求項2】 表面に凹凸を有する金属薄板を用いてなる請求項1記載のシリコーン樹脂-金属複合体。

【請求項3】 燃料電池のセパレータに用いることを特徴とする請求項1乃至2記載のシリコーン樹脂-金属複合体。

## 【発明の詳細な説明】

【0001】

【発明の属する技術分野】本発明は、電気・電子部品等のクッション材、パッキン材、スペーサー、特に燃料電池のセパレータとして好適に使用でき、複雑な形状や、部品の小型化が可能なシリコーン樹脂-金属複合体に関する。

【0002】

【従来の技術】従来からシリコーンゴムは、耐熱性や電気的絶縁性等の特性に優れていることから、上記クッション材やスペーサー等の各種用途に使用されている。

【0003】

【発明が解決しようとする課題】上記のシリコーンゴム単体からなり、比較的肉厚の薄い薄膜のものを電気・電子部品等にそのまま組み入れようとすると、薄膜上にシワが生じたり、薄膜同志で密着し剥がしづらくなる等の作業性に問題があった。そこで、このような問題点を解消するためにシリコーンゴム単体と非伸縮性の金属薄板と複合一体化した積層体が知られている(例えば、特開平4-86256号、実開平2-470号)。

【0004】上記複合一体化の方法としては、通常、金属薄板の少なくとも片面にシリコーンゴムシートを載置し、加熱加圧する方法が行われているが、部分的に載置する場合、位置合せが困難であったり、さらには金属薄板の表面に凹凸があるものでは、均一に貼り合わせる事が困難という問題があった。

【0005】

【課題を解決するための手段】本発明は、上述の問題点を解消できるシリコーン樹脂-金属複合体を見出したものであり、その要旨とするところは、金属薄板の少なくとも片面に厚みが0.05mm～1.0mmで硬度(JISK6301 スプリング式硬さ試験 A形)が40～70の範囲のシリコーン樹脂層を射出成形法により形成してなるシリコーン樹脂-金属複合体にある。

【0006】

【発明の実施の形態】以下、本発明を詳しく説明する。本発明に使用される金属薄板としては、鋼板、ステンレス鋼板、メッキ処理鋼板、アルミニウム板、銅板、チタン板等が好適であるが、これらには、限定されない。金

属薄板の厚みは0.1～2.0mmの範囲のものが好適であり、表面に凹凸を有するものも使用できる。この凹凸は用途等によりその形状は異なるが、3次元的な構造であって、用途が燃料電池、特に固体高分子型燃料電池のセパレータでは、燃料ガスの流路用溝等が相当する。

【0007】なお、金属薄板のシリコーン樹脂層と接する面には、密着性の点から各種プライマー層を設けることが好ましい。このプライマー層はスプレー法やディッピング法等の通常の方法により被覆すればよい。プライマー層の厚みは0.01μm～5.0μmの範囲であることが好ましく、0.01μm未満では、塗布厚さの調整が困難で有り、5.0μmを超えるものでは、密着性の改良効果が少ない。

【0008】上記金属薄板の少なくとも片面には、シリコーン樹脂層を形成するが、使用するシリコーン樹脂は液状のシリコーン樹脂であって、通常の付加型液状シリコーン樹脂で二液タイプのものが使用でき、粘度が $10^3 \sim 10^4$  ポイズ(25℃)の樹脂が好適に使用できる。粘度が $10^3$  ポイズ未満のものでは、柔らかすぎて取り扱いにくく、 $10^4$  ポイズを超えるものでは、射出成形時の流動性に劣り易い傾向にある。また、必要に応じて微粉末シリカ、ケイ素土、高熱伝導性無機ファイラー等の充填剤を添加してもよい。

【0009】本発明ではシリコーン樹脂層を射出成形法により形成することに特徴があり、射出成形法としては金属薄板を金型内に保持して樹脂を射出する、いわゆるインサート成形法によればよく、金型温度として130～180℃の範囲、射出圧として150～500Kgf/cm<sup>2</sup>の範囲で気泡やバリ等が発生しない条件を適宜決めて成形すればよい。

【0010】射出成形後のシリコーン樹脂層の厚みは0.05mm～1.0mmの範囲とする必要がある。0.05mm未満では、正確な射出成形がしづらく、また弾力効果が出にくく、パッキン材としての利用性に劣り、1.0mmを超えるものでは燃料電池、特に固体高分子型燃料電池のセパレータ用としての用途では小型化しづらく、またコスト高になるという問題がある。

【0011】さらに、射出成形後のシリコーン樹脂層の硬度を40～70、好ましくは50～60の範囲とする必要がある。硬度の測定方法はJISK6301 スプリング式硬さ試験 A形に準拠して行なう。この硬度が40未満では柔らかすぎて取り扱いにくく、70を超えると硬くなりすぎて弾力性に欠けるという問題がある。

【0012】本発明の複合体は電気・電子部品等のクッション材、パッキン材、スペーサー、Oリング等に使用できるが、特に燃料電池(固体高分子型燃料電池)のセパレータの用途に好適に使用できる。このようなセパレータはより小型化が要求され、また多数のセパレータを重ね合わせて使用することから精度が優れ、生産性のよいセパレータが要求されており、射出成形によりシリコ

(3)

特開平11-129396

3

ン樹脂層を形成する本発明の複合体はこのような要求を満足することが容易である。

【0013】

【実施例】以下、実施例について説明するが、本発明はこれに限定されるものではない。

（実施例1）図2の断面概略図に示した射出成形用金型を使用し、図1の断面概略図に示したシリコン樹脂—金属複合体のパッキン材を得た。図1のパッキン材は円盤状のものであって、円環状の凹凸部Aを設けたステンレス鋼板からなる金属薄板11（厚み0.3mm）と、この表面にリブ部21を有するシリコン樹脂層2が部分的に同心円状に形成されている。

【0014】パッキン材は外径が200mmで同心円状に部分的にリブ部を設けた円形のパッキンでシリコン樹脂層2の厚みは60~100 $\mu$ m、リブ部21の形状は幅500 $\mu$ m×高さ500 $\mu$ mのほぼ断面台形状のものをそれぞれ2本形成している。シリコン樹脂層2の硬度は60であった。

【0015】上記パッキン材は図2の断面概略図に示した射出成形用金型を用いた射出成形装置を使用して製造したものであり、図2に示すように凹凸部を設けたステンレス鋼板11は雄型4に載置し保持され、雌型5のゲート3、3から液状シリコン樹脂が射出される。

【0016】液状シリコン樹脂として信越化学（株）製 KE-1950-60を使用し、金型温度160℃、射出圧300Kg f/cm<sup>2</sup>の条件で、ステンレス鋼板（表面プライマー処理 東芝シリコン（株）製ME-21）の片面に射出成形した。脱型した後、図1に示した断面概略図のパッキン材を得た。得られたパッキン材ではステンレス鋼板とシリコン樹脂層との間の接着性が良好で剥離等がなく、またバリや気泡等の発生が見られずパッキン材としての性能上問題なかった。

【0017】（実施例2）次に、他の実施例として射出成形法により形成してなるシリコン樹脂—金属複合体製の燃料電池セパレータについて図3~10に基づいて説明する。図3に示した射出成形用金型30に金属薄板からなる金属製のセパレータ本体31をセットし、セパレータ本体31の一側面32にシリコン樹脂層（硬度60）からなるシール材33aを射出成形法により形成した後、セパレータ本体31を図4に示した射出成形用金型34にセットし、セパレータ本体31の他側面35にシリコン樹脂層（硬度60）からなるシール材33bを射出成形法により形成し、図5~6に示す燃料電池セパレータ36を形成した。

【0018】セパレータ本体31の厚みは0.3mmであり、中央部37にはプレス成形又はエッチング処理により凹凸状のガス溝パターン38が形成され、周縁部39には反応ガス通路孔40、ピン孔41及び冷却媒体通路42が穿孔され、反応ガス通路孔40と中央部37とは凹凸状の反応ガス通路部43により連通されている。

4

セパレータ本体31の凹凸状のガス溝パターン38の頂面は電極接触部44を形成し、電極接触部44には耐蝕性かつ良導電性の表面処理が施されている。

【0019】図5及び図7に示すように、セパレータ本体31の一側面32の周縁部39aには、板状の基体部45と凸条のリブ部46とが形成されたシール材33aが一体的に被着されている。図6及び図7に示すように、他側面35の周縁部39bには板状の基体部47のみからなるシール材33bが一体的に被着されている。

【0020】反応ガス通路部43にはセパレータ本体31の両側面の周縁部39a、39bとシール材33a、33bとの間に薄板耐蝕性剛体板（SUS304、厚さ0.1mm）48が介設され、薄板耐蝕性剛体板48はシール材33a、33bに一体的に被着され、反応ガス通路部43中での反応ガスの流通が確保されている。シール材33a、33bの基体部45、47の厚みは好ましくは50~350 $\mu$ mであり、特に好ましくは60~200 $\mu$ mである。

【0021】リブ部46はシール材33aの内縁に沿って一周するように形成された第1リブ部46aと反応ガス通路孔40の外周を一周するように形成された第2リブ部46bと冷却媒体通路42の外周を一周するように形成された第3リブ部46cとから形成され、リブ部46の断面形状は幅500 $\mu$ m、高さ500 $\mu$ mの断面略半円状をなしている。

【0022】図7に示すように、燃料電池セパレータ36、49、50、電極51及びスペーサ52が組み合わされて単電池ユニット53が構成される。図8に示すように、燃料電池セパレータ49は、リブ部54が形成された側のシール材55にセパレータ本体56の中央部57と冷却媒体通路58とを連通する冷媒連通路59が形成されている点を除いて燃料電池セパレータ36と同様に形成されている。

【0023】図9に示すように、燃料電池セパレータ50は、リブ部60が形成されない側のシール材61にセパレータ本体62の中央部63と冷却媒体通路64とを連通する冷媒連通路65が形成されている点を除いて燃料電池セパレータ36と同様に形成されている。

【0024】図10に示すように、複数の単電池ユニット53をさらに積層し、それらの両側にターミナル66、電気絶縁板67及びプレッシャープレート68を配設し、プレッシャープレート68を押え荷重（図8中矢印で表示）を加えて電池スタック69を構成する。

【0025】このように組付けられた電池スタック69は窒素ガスにてゲージ圧力0.294MPaにおいてもリークが極めて少なく、実際の発電状況においても、ゲージ圧力各0.196MPaで改質ガス及び空気のリークは認められず、耐久性も良好であった。

【0026】

【発明の効果】上述したように、本発明のシリコン樹脂

(4)

特開平11-129396

5

6

脂-金属複合体では、シリコン樹脂層を射出成形法により形成することにより、立体的な形状の複合体を正確にかつ効率的に製造できるという利点を有しており、各種電気・電子部品等のクッション材、パッキン材、スペーサー、特に燃料電池（固体高分子型燃料電池）のセパレータとして好適に使用できる。

【図面の簡単な説明】

【図1】本発明の複合体の一例であるパッキン材を示す断面概略図である。

【図2】図1のパッキン材を成形するための射出成形用金型の一例を示す断面概略図である。

【図3】本発明の複合体を用いた燃料電池セパレータを成形するための射出成形用金型の要部断面図である。

【図4】図3に示した射出成形用金型と別の射出成形用金型の要部断面図である。

【図5】本発明の実施例の燃料電池セパレータの一面側\*

\*を示す図である。

【図6】図5の燃料電池セパレータの側面側を示す図である。

【図7】複数の燃料電池セパレータを積層して形成した単電池ユニットの要部拡大断面図である。

【図8】上記単電池ユニットを形成する別の燃料電池セパレータを示す図である。

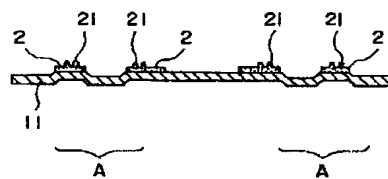
【図9】上記単電池ユニットを形成するさらに別の燃料電池セパレータを示す図である。

【図10】上記単電池ユニットを組み合わせて形成した電池スタックを示す図である。

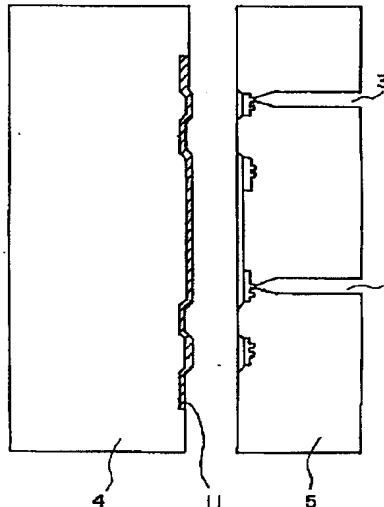
【符号の説明】

- 11 … 金属薄板
- 2… シリコン樹脂層
- 21… リブ部

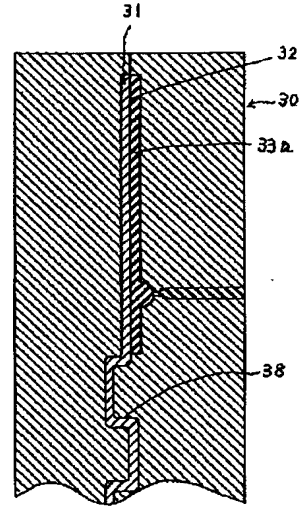
【図1】



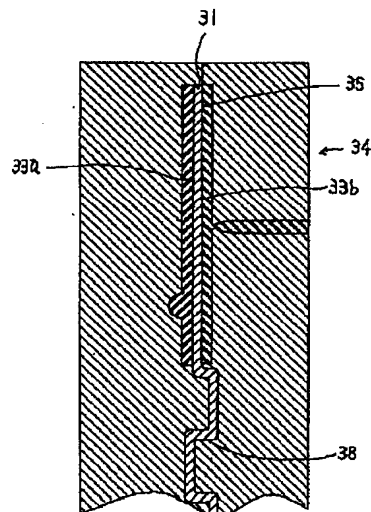
【図2】



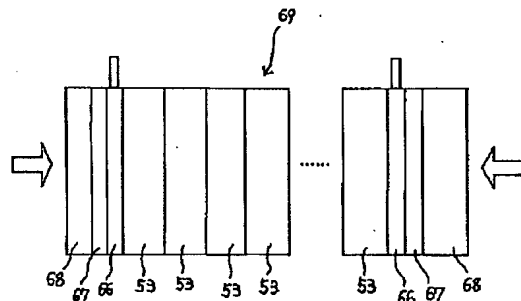
【図3】



【図4】



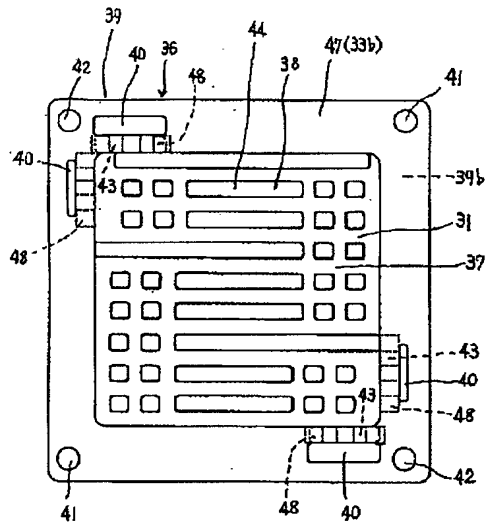
【図10】



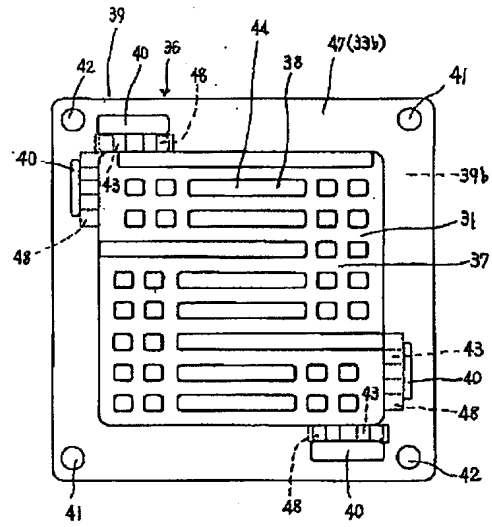
(5)

特開平11-129396

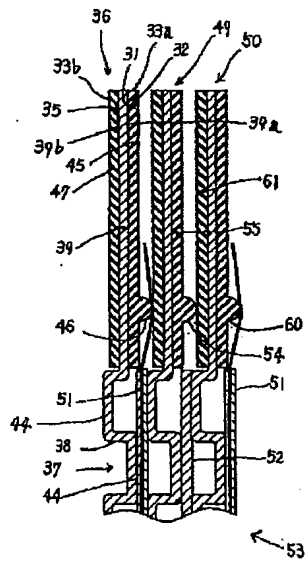
【図5】



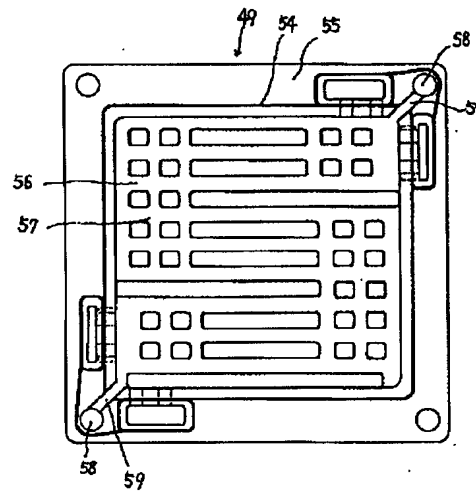
【図6】



【図7】



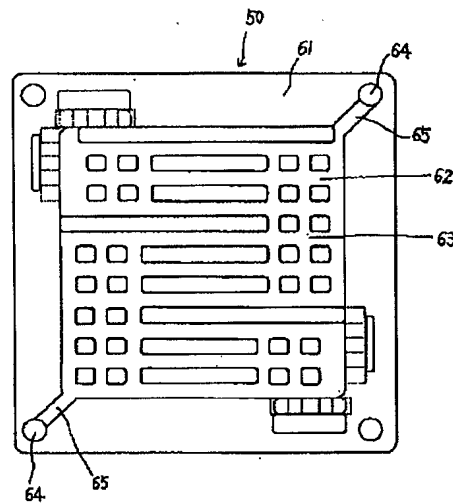
【図8】



(6)

特開平11-129396

【図9】



フロントページの続き

(72)発明者 恒川 武幸  
滋賀県長浜市三ツ矢町5番8号 三菱樹脂  
株式会社長浜工場内

(72)発明者 山口 悦郎  
神奈川県平塚市真土2480番地 三菱樹脂株  
式会社平塚工場内